



TITLE:

Electronic Excitation and Density Response
in Liquid Alkali Metals Studied by Inelastic X-
ray Scattering(Abstract_要旨)

AUTHOR(S):

Hagiya, Toru

CITATION:

Hagiya, Toru. Electronic Excitation and Density Response in Liquid Alkali Metals Studied
by Inelastic X-ray Scattering. 京都大学, 2020, 博士(理学)

ISSUE DATE:

2020-03-23

URL:

<https://doi.org/10.14989/doctor.k22240>

RIGHT:

学位規則第9条第2項により要約公開; 許諾条件により本文は2020-08-
25に公開

(続紙 1)

京都大学	博 士 (理 学)	氏名	萩谷 透
論文題目	“Electronic Excitation and Density Response in Liquid Alkali Metals Studied by Inelastic X-ray Scattering” (非弾性 X 線散乱実験による液体アルカリ金属中の電子励起と密度応答関数の研究)		
(論文内容の要旨)			
<p>液体金属は伝導電子とイオンから構成される二成分の荷電粒子系とみなすことができ、伝導電子による遮蔽効果がイオン間の相互作用を記述する上で重要な役割を果たす。電子による遮蔽効果は、電子集団の多体効果を反映した物理現象であり、その理解は凝縮系物理学における重要な課題である。電子遮蔽を記述する物理量として、電子誘電関数$\epsilon(\mathbf{q}, \omega)$がある。ここで、$\mathbf{q}$は波数ベクトル、$\omega$は周波数である。電子誘電関数$\epsilon(\mathbf{q}, \omega)$(以下、液体の等方性により、$\mathbf{q}$をその大きさ$q$で表す。)は、外場に対する電子の密度応答の情報を含んでいる。光学測定により$q \approx 0$における$\epsilon(\mathbf{q}, \omega)$の$\omega$依存性がこれまで実験的に調べられてきた一方で、有限波数における$\epsilon(\mathbf{q}, \omega)$に関する実験的情報は非常に少なく、電子による遮蔽効果の微視的様相は未だ十分に明らかにされていない。そこで、申請者は液体アルカリ金属に対して非弾性X線散乱 (Inelastic X-ray scattering, IXS) 実験を行うことで、$\epsilon(\mathbf{q}, \omega)$に関する情報を得ることを試みた。</p> <p>まず、融点に比べて高温の領域における液体Rbに対してIXS測定を行い、プラズモン励起エネルギーを決定した。プラズモンは電子の集団励起であり、その励起エネルギー$\hbar\omega_p(\mathbf{q})$は、$\epsilon(\mathbf{q}, \omega_p(\mathbf{q})) = 0$の関係により与えられる。先行研究において、液体金属の$\hbar\omega_p(\mathbf{q})$は融点近傍でしか実験的に決定されていなかったが、本研究では温度を上昇させて測定を行うことで、初めて液体金属における$\hbar\omega_p(\mathbf{q})$の密度依存性を決定することに成功した。得られた$\hbar\omega_p(\mathbf{q})$の密度依存性を、電子ガスモデルの結果と比較したところ、実験の密度依存性が電子ガスモデルによってよく記述されることを見出した。しかし、実験で得られた$\hbar\omega_p(\mathbf{q})$の絶対値は電子ガスモデルの予測に比べて小さい値を示した。それに対して、申請者はバンド間遷移を考慮したプラズモンの励起エネルギーを、液体構造因子を用いて定式化した理論式から計算することで、実験の値を定量的に再現することに成功した。</p> <p>また、申請者は固体(多結晶)と液体Liに対してIXS測定を行い、静的密度応答関数$\chi(\mathbf{q}, \omega = 0)$を決定した。$\chi(\mathbf{q}, 0)$は静的な外部ポテンシャルによって誘起される電子密度を記述する関数であり、金属における遮蔽電子密度を計算する上で重要な役割を果たす。本研究において、先行研究に比べて非常に広い(\mathbf{q}, ω)範囲で測定したIXSのスペクトルをクラーマス・クローニッヒ変換することにより、単純金属に対して初めて$\chi(\mathbf{q}, 0)$を実験的に決定するに至った。実験的に得られた$\chi(\mathbf{q}, 0)$の微分係数は、固体と液体の両方で、$q = 2k_F$において極大となる特異性を示した。この特徴は、金属の運動量分布の不連続性を反映したものであり、IXSによって得られた遮蔽関数が、単純金属の特徴を捉えていることを示している。また、$\chi(\mathbf{q}, 0)$を使用して、点電荷によって誘起される遮蔽電子密度$\Delta n(\mathbf{r})$を計算したところ、波数空間における$2k_F$の特異性を反映して、$\Delta n(\mathbf{r})$にフリーデル振動の特徴である$2k_F$の長距離振動が表れた。また、申請者は固体と液体の差に注目し、フリーデル振動の振幅が融解に伴って小さくなることを見出した。それに対し、理論的な見積もりを行い、融解に伴うフェルミ面のぼやけを考慮することによって、実験結果を定性的に再現できることを示した。</p>			

(続紙 2)

(論文審査の結果の要旨)

本論文では、放射光を利用した非弾性X線散乱(IXS)の手法を用いて、電子励起と静的な遮蔽について調べることにより、アルカリ金属液体における電子誘電遮蔽の挙動を明らかにしたものである。金属における電子誘電遮蔽は、電子の多体効果が関与する物理現象であり、その挙動の微視的解明は多体電子理論における重要な課題の一つである。誘電遮蔽効果は電子ガスモデルによって精力的に調べられており、誘電関数 $\epsilon(q, \omega)$ の電子密度パラメータ r_s (電子のWigner-Seitz半径をBohr半径で規格化した値) に対する依存性の精密化が進展している。本論文における測定対象であるアルカリ金属は、単体金属元素のなかでも、その価電子状態が電子ガスモデルによって最も良く記述される元素として認知されており、その実験的な情報は電子ガスモデルの妥当性を検証する点でも極めて有益である。また、液体は固体と異なり、温度および圧力などの熱力学条件を制御することによって、密度変化させることができる。制御された熱力学条件においてIXS測定を行うことにより、 $\epsilon(q, \omega)$ の電子密度依存性の情報を実験的に得ることが可能となる。

液体金属試料に対するIXS測定は一般的に困難であり、特に $\chi(q, 0)$ を決定するためには、広いエネルギー範囲にわたって散乱信号を測定する必要がある。近年、放射光施設における分光器や検出器に関する技術が発展したことにより、IXSのシグナルを短時間で精度よく測定することが可能となった。しかしながら、原理的に散乱断面積の小さなIXS測定では、弾性散乱などの他手法と比べて測定時間は長時間化し、試料の安定性は必須要件である。申請者は反応性の高い液体金属試料を長時間安定に保持するための試料セルを開発し、放射光IXSと組み合わせることにより、液体金属の $\chi(q, 0)$ を初めて実験的に得ることに成功した。さらには固体状態と液体状態における $\chi(q, 0)$ を比較することで、融解が遮蔽効果に与える影響についても明らかにしている。

電子ガスモデルは、密度汎関数法に基づく第一原理計算において電子間相互作用(交換相関効果)の取り扱いの基礎を与える。本研究における実験で得られたアルカリ金属液体における電子誘電関数と、その密度依存性に関する情報は、電子ガスモデルにおける電子間相互作用の取り扱いを改善していく上で有用な情報となり得るという観点からも有意義である。

また、実験的に決定した $\chi(q, 0)$ は、単純金属の有効イオン間ポテンシャルと結びついている。有効イオン間ポテンシャルは、金属における分子動力学シミュレーションで鍵となる物理量であり、本研究で得られた結果は、有効イオン間ポテンシャルを構築する上でも重要な示唆を与える。

このように、本論文は実験の立場から、液体金属という構造不規則系における微視的電子状態に対して新しい知見を与えるものである。よって、本論文は博士(理学)の学位論文として価値あるものと認める。また、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。

要旨公表可能日： 年 月 日以降